

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報 (A)

(11)特許出願公表番号

特表平11-510473

(43)公表日 平成11年(1999)9月14日

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

F I

A 6 1 K 35/78

A 6 1 K 35/78

C

A 2 3 F 3/06

A 2 3 F 3/06

S

3/14

3/14

3/36

3/36

A 6 1 K 9/48

A 6 1 K 9/48

A

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 11 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平8-523096

(86) (22)出願日 平成7年(1995)12月27日

(85)翻訳文提出日 平成10年(1998)2月20日

(86)国際出願番号 PCT/EP95/05149

(87)国際公開番号 WO97/07685

(87)国際公開日 平成9年(1997)3月6日

(31)優先権主張番号 19530868.9

(32)優先日 1995年8月22日

(33)優先権主張国 ドイツ(DE)

(81)指定国 E P (AT, BE, CH, DE,  
DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, M  
C, NL, PT, SE), JP, US

(71)出願人 フリーズードライ フーズ ゲゼルシャフト ミット ベシュレンクテル ハフツング

ドイツ連邦共和国 グレーフェン アム  
エッゲンカンプ 8-10

(72)発明者 ベーター ローデヴァルト  
ドイツ連邦共和国 アルテンベルゲ イス  
フォルトシュトラーセ 4

(74)代理人 弁理士 矢野 敏雄 (外3名)

(54)【発明の名称】凍結乾燥された緑茶葉粉末を含有するカプセル

(57)【要約】

本発明は、緑茶(*Thea Chinensis*)のポリフェノールを容易に供給可能で酸化されていない形で含有する製剤を製造する方法に関し、これは、新鮮な緑茶葉を、含有するフェノールオキシダーゼの活性が常温での値の最高1%まで低下するまで冷却し、同時に又はその直後に反応媒体として作用する水を除去することよりなる。この方法で製造された生成物を熱水中に可溶性のカプセル中に充填する。

**【特許請求の範囲】**

1. 緑茶(*Thea chinensis*)のポリフェノールを容易に供給可能で酸化されていない形で含有する製剤を製造するために、新鮮な緑茶葉を、含有フェノールオキシダーゼの活性が常温での値の最高1%まで低下するまで冷却し、同時に又はその直後に反応媒体として作用する水を除去し、この冷却され乾燥された緑茶葉を粉末にし、非酸化性及び無水の条件下に包装することを特徴とする、緑茶のポリフェノールを容易に供給可能で、酸化されていない形で含有する製剤を製造する方法。
2. フェノールオキシダーゼの活性低下及び脱水を、同時に凍結乾燥により行う、請求項1に記載の方法。
3. 非酸化性の雰囲気中で操作する、請求項1又は2に記載の方法。
4. 窒素雰囲気又は／及び希ガス雰囲気下に操作する、請求項3に記載の方法。
5. 得られた粉末を、生物認容性で、100°Cの熱水中に完全に溶けるカプセル中に酸素遮断下に充填する、請求項1から4のいずれか1項に記載の方法。
6. 粉末に食用可能な酸化防止剤、ビタミン又は／及び微量元素を添加する、請求項5に記載の方法。
7. 粉末に矯味矯臭性の無水の芳香物質、殊に植物成分を添加する、請求項5又は6に記載の方法。
8. 茶製造のために、公知の植物粉末を添加する、請求項7に記載の方法。
9. 粉末化された茶葉をカフェイン除去のために抽出する、請求項1から9のいずれか1項に記載の方法。
10. 抽出を、圧力及び温度に関して過臨界のCO<sub>2</sub>を用いて実施する、請求項9に記載の方法。
11. 請求項5から10のいずれか1項に記載の方法で得られる、凍結乾燥された新鮮緑茶葉を粉末状で含有するカプセル。

### 【発明の詳細な説明】

#### 凍結乾燥された緑茶葉粉末を含有するカプセル

本発明は、新鮮な緑茶葉を、含有するフェノールオキシダーゼの活性が通常温度での値の最大1%まで低下するまで冷却し、同時に又はその直後に反応媒体として作用する水を除去することを特徴とする方法で緑茶(*Theachinensis*)のポリフェノールを容易に供給可能で、酸化されていない形で含有する製剤を製造する方法及びこの方法で製造された製品に関する。

非発酵(緑)茶は、嗜好品としての作用と並んで、一方で、ヒト又は動物の組織の酸化防止能力を高め、更に血管系、殊に毛細管系を保護することにより病気の発生を阻止するために好適である薬物学的特性をも有することで知られている。

非発酵茶の酸化防止特性は、緑茶の葉の中に含有されているポリフェノールの、特にガロカテキンの遊離ラジカルを失活させる能力に帰因せしめることができる。これに関する概要是、添付文献目録の文献1に存在する。

遊離ラジカルの結合との狭い関係で、非発酵茶の発癌及び発前癌物質に対する多くの立証された失活作用が存在する(文献2)。非発酵茶の抗菌及び静菌作用が同様に立証されている(文献3)。最後に、動物実

験で、血漿コレステリンの低下も明らかにされた(文献4)。

茶葉のポリフェノールの利用のために、従来は、水溶性成分をできるだけ定量的に抽出し、かつ水溶性エキスを製造するために種々の抽出法が使用され、この際、出発物質として発酵茶も非発酵茶も使用されていた(文献5)。

茶葉の価値の認められた成分の酸化は、収穫の直後にフェノールオキシダーゼにより開始される。加熱によるフェノールオキシダーゼの失活の後にも、ポリフェノールの酸化は更に進行する。茶の発酵は、最終的に、この酸化を、特定の芳香物質を形成するように制御して利用する結果をもたらす。

従って、本発明は、新鮮な緑茶葉の内容物の総パレットをできるだけ充分に定性的にも定量的にも完全に得ると同時に、消費者に容易に供給可能にすることを課題としている。殊に、本発明の課題は、品質的にも量的にも無傷で得られる内

容物を、消費者にこの茶葉の内容物を浸出物の形で服用するか又は茶葉そのものを乾燥した形で服用する可能性を提供する形にすることである。

この課題は、本発明により、先ず、新鮮緑茶葉の冷却によりフェノールオキシダーゼの活性を最小にし、同時に又はその直後に反応媒体である水の除去によりフェノールオキシダーゼによるポリフェノールの酵素

反応を阻止することにより解決される。このためには、殊に新鮮な緑茶葉を、含有しているフェノールオキシダーゼの活性が常温での値の最大1%まで低下するまで冷却し、同時に又はその直後に反応媒体として作用する水を除去する。

冷却及び脱水を、凍結乾燥により同時に行うのが有利である。この凍結乾燥された非発酵茶葉を、その後非酸化性の雰囲気中で微細に粉碎し、引き続き、再び酸素遮断下に包装する。非酸化性の雰囲気としては、窒素一又は／及び希ガス雰囲気を使用するのが有利である。しかしながら、他の雰囲気組成も、それらがポリフェノールに酸化性の作用を及ぼさないことを前提として使用することができる。

本発明により製造された凍結乾燥された微細紛状の非発酵茶葉は、直接包装することも又は予めカフェインの除去のための処理を行うこともできる。このカフェイン除去は、過臨界CO<sub>2</sub>を用いる（即ち圧力及び温度に関して臨界限度の上有る条件下で）抽出により行うのが有利である。過臨界CO<sub>2</sub>を用いる植物物質の抽出法は、当業者にとっては周知であり、従って詳細な説明は必要ない。このようなカフェイン抽出を実施する場合には、充填の前に、場合により存在する抽出剤の残分を簡単に大気圧で揮発させ、次いで、CO<sub>2</sub>ー抽出の行われなかつた粉末におけると同様な方法で充填を実施する。

この充填は、生物認容性で、熱水中で完全に溶けるカプセル中に前記の条件下に行うのが有利である。ゼラチン製の有蓋カプセル又は軟ゼラチンカプセルが特に好適であることが立証された。しかしながら、原則的に、本発明のこの実施形のために、100°Cの水中に残留物なしに溶解し、薬物学的に認容性である任意のカプセル材料が使用可能である。

しかしながら、本発明により得られる粉末状の茶葉製剤は、非酸化性で無水の条件に保持されうる限りにおいて、他の形で包装することもできる。例えば、無水の方法及び保護雰囲気の使用下におけるリポソーム中の包装が使用される。このようなりポソーム製剤の好適な製法は、当業者にとっては周知のことである。しかしながら、その簡単な製造性及び多様な使用可能性に基づき、本発明により得られるカプセルが有利であり、従って、それ自体も本発明の目的物である。本発明によるカプセルは、一方で茶葉粉末の酸化に対して保護作用をするが、他方で消費者に熱水中の懸濁液としての本発明により製造された茶葉粉末の服用のための、矯味矯臭的に中性の又は矯味矯臭的に所望に応じて調節された代用品(Alternative)を提供する目的にも役立つ。

本発明によるカプセルは、付加的に、酸化防止剤、ビタミン及び微量元素を添加することができる。同様に、矯味矯臭性の無水の芳香物質、殊に植物成分を添

加することができる。この場合に、茶製造のために公知である乾燥植物、例えばペパーミント、ゼニアオイ、カモミレ等を粉末状で使用するのが有利である。

栄養補充剤として、本発明により得られる、微細粉末状の非発酵緑茶葉100～400mgの内容物を含有するカプセルは、水性懸濁液として、又はカプセル形で1日1～3回服用される。茶葉の長時間保持性の緩徐に開始し持続性の作用を重要視すべき場合には、カプセルに本発明により得られる茶葉物質400～800mgを充填し、これを必要に応じて水性懸濁液として又はカプセルとして服用する。

次の実施例につき本発明を説明する。

#### 例 1

茶の木から新しく摘み取られた茶葉を保冷車中で凍結乾燥のために輸送し、同じ日に低温凍結及び凍結乾燥させる。この凍結乾燥された茶葉を窒素ガス吹き込み下に粉碎する。この粉末を直ちに窒素ガス吹き込み下に、密に閉鎖する容器中に充填するか、又は直ちに窒素ガス吹き込み下で有蓋ゼラチンカプセル中に充填する。有蓋ゼラチンカプセルの代わりに軟ゼラチンカプセルを使用することもできる。

## 例2

例1により製造された凍結乾燥茶葉粉末をカフェイン抽出のために、過臨界CO<sub>2</sub>を用い、約40°Cの温度及び約200バールの圧力で抽出する。CO<sub>2</sub>は抽出

されたカフェインの分離の後に臨界点の下での放圧によりリサイクルさせ、抽出条件の新たな調節の後に、この操作をカフェインの残含量が当初値の5%以下まで低下するまで繰り返す。抽出された茶粉末に、植物物質からの二酸化炭素発生が終了するまで窒素ガスを吹き込み、次いで窒素ガス吹き込みの継続下に例1の記載と同様にカプセル中に充填する。

## 文献目録

文献1 Scavenging Effect of Extracts of Green Tea and Natural Antioxidants on Active Oxygen Radicals. Baolu z., xiyojie L., Rungen H., Shujun Ch. and Xin W. Cell Biophysics 1989, 14: 175-182

文献2 Anticarcinogenic activity of green tea polyphenols. Komori A. et al., Jpn. J. Clin. Oncol. 1993, June 23 (3): 186-90

文献3 A Pilot Study of Japanese Green Tea as a Medicament : Antibacterial and Bactericidal Effects. Naoki H., Yoshinori M., Masato I., Toru M. and Hiroshi N. J. Endodontics 1991, 17(3): 122-24

文献4 Effect of Green Tea Catechins on Plasma Cholesterol Level in Cholesterol-Fed Rats. Muramatsu K., Fukuyo M. and Hara Y., J. Nutr. Sci. Vitaminol 1986, 32:613-622

文献5 DE 43 34 734 A1  
GB 13 29 612  
NL 68 09 368

(7)

特表平11-510473

Dalgleish J. McN: Freeze-Drying for the Food Industries, Elsevier applied Science, 1990 S. 68/69

## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		In international Application No PCT/EP 95/05149									
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> IPC 6 A23F3/14 A23F3/06 A61K35/78 A23F3/36											
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC											
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 A23F A61K											
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched											
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)											
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b> <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Category *</th> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td style="padding: 2px;">X</td> <td style="padding: 2px;">CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 111, no. 3, 17 July 1989 Columbus, Ohio, US; abstract no. 17768, see abstract &amp; JP,A,63 267 726 (TERUMO CO) 4 November 1988 ---</td> <td style="padding: 2px;">1,2</td> </tr> <tr> <td style="padding: 2px;">X</td> <td style="padding: 2px;">DATABASE WPI Week 8401 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 84-002818 &amp; JP,A,58 198 246 (TAIYO KAGAKU KK) see abstract ---</td> <td style="padding: 2px;">1,5 -/-</td> </tr> </tbody> </table>			Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 111, no. 3, 17 July 1989 Columbus, Ohio, US; abstract no. 17768, see abstract & JP,A,63 267 726 (TERUMO CO) 4 November 1988 ---	1,2	X	DATABASE WPI Week 8401 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 84-002818 & JP,A,58 198 246 (TAIYO KAGAKU KK) see abstract ---	1,5 -/-
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.									
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 111, no. 3, 17 July 1989 Columbus, Ohio, US; abstract no. 17768, see abstract & JP,A,63 267 726 (TERUMO CO) 4 November 1988 ---	1,2									
X	DATABASE WPI Week 8401 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 84-002818 & JP,A,58 198 246 (TAIYO KAGAKU KK) see abstract ---	1,5 -/-									
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C.		<input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.									
* Special categories of cited documents : 'A' document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance 'E' earlier document but published on or after the international filing date 'L' document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) 'D' document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means 'P' document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed											
Date of the actual completion of the international search  22 April 1996		Date of mailing of the international search report  10.05.96									
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5318 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel: (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epc nl, Fax: (+ 31-70) 340-3016		Authorized officer  Desmedt, G									

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int'l Application No.  
PCT/EP 95/05149

C(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DATABASE WPI Week 9147 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 91-343136 & JP,A,03 228 646 (NIKEN FOOD KK) , 9 October 1991 see abstract ---	1,2
X	DATABASE WPI Week B932 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 89-230739 & JP,A,01 165 341 (ISHIKI IKKO-DO KK) , 29 June 1989 see abstract ---	12
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 12 no. 446 (C-546) ,24 November 1988 & JP,A,63 169933 (ATSUSHI SUGANUMA) 13 July 1988, see abstract ---	1.2.5
A	DATABASE WPI Week 9532 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 95-241233 & CN,A,1 088 738 (ZHENG C) , 6 July 1994 see abstract ---	1,2,5
A	DE,A,34 14 767 (HOPFENEXTRAKTION HVG BARTH) 7 November 1985 see claims 1-5 ---	10,11
A	DATABASE WPI Week 7942 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 79-76387b & JP,A,54 116 394 (TOYO PULP KK) see abstract ---	
A	DATABASE WPI Week 9203 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 92-019297 & JP,A,03 266 954 (GOTO Y) , 27 November 1991 see abstract -----	

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International Application No  
PCT/EP 95/05149

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE-A-3414767	87-11-85	NONE	

---

フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	F I	
A 6 1 K 31/00	6 4 3	A 6 1 K 31/00	6 4 3
35/78		35/78	X
			Y